

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-330793

(43)Date of publication of application : 22.12.1997

(51)Int.Cl.

H05B 33/22
H05B 33/10

(21)Application number : 08-171718

(71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 11.06.1996

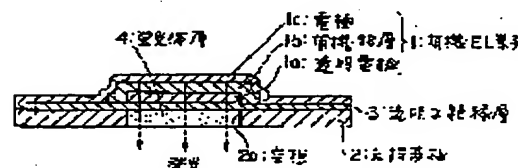
(72)Inventor : SAKAEDA NOBORU
MATSUURA MASAHIDE
SHOJI HIROSHI

(54) MULTICOLOR LUMINESCENT DEVICE AND MANUFACTURE THEREOF

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent(EL) multicolor luminescent device having a its superior luminous efficiency, visibility, and light emitting life and having its superior shock resistance and a method capable of stable manufacturing without degrading performance such as luminous efficiency of this multiple color luminescent device.

SOLUTION: This luminescent device is provide with a support substrate 2, an organic EL element 12 arranged on this support substrate, and a phosphor 4 arranged corresponding to a transparent electrode 1a or an electrode 1c of this organic EL element so as to absorb light emission from this organic EL element 1 and emit phosphorous light of different visible lights, a support substrate has a gap 2a at a part corresponding to a light emitting part of the organic EL element, the phosphor 4 is embedded in that gap 2a, and a transparent insulation 3 is arranged among the phosphor 4, the support substrate 3, and the organic EL element 1.



LEGAL STATUS.

[Date of request for examination]

10.07.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-330793

(43)公開日 平成9年(1997)12月22日

(51)Int.Cl.⁶

H 0 5 B 33/22

33/10

識別記号

庁内整理番号

F I

H 0 5 B 33/22

33/10

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数8 F D (全 25 頁)

(21)出願番号 特願平8-171718

(22)出願日 平成8年(1996)6月11日

(71)出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72)発明者 柴田 暢

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(72)発明者 松浦 正英

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(72)発明者 東海林 弘

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

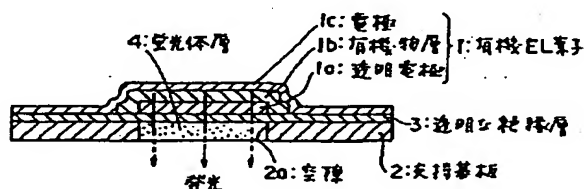
(74)代理人 弁理士 渡辺 喜平 (外1名)

(54)【発明の名称】 多色発光装置およびその製造方法

(57)【要約】

【課題】 優れた発光効率、視認性、および発光寿命を有するとともに、耐衝撃性にも優れた有機EL多色発光装置を提供すること、およびこの多色発光装置の発光効率等の性能を低下させることなく安定して、製造することができる方法を提供する。

【解決手段】 支持基板2と、この支持基板上に配設した有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子1と、この有機EL素子1からの発光を吸収して異なった可視光の蛍光を発光し得るようにこの有機EL素子の透明電極1aまたは電極1cに対応して配設した蛍光体4とを備え、支持基板が、有機EL素子の発光部分に対応する部分に空隙2aを有し、その空隙2aに蛍光体4が埋設されてなり、かつ蛍光体4および支持基板2と有機EL素子1との間に透明な絶縁層3が配設されてなることを特徴とする多色発光装置。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 支持基板と、この支持基板上に配設した有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子と、この有機EL素子からの発光を吸収して異なった可視光の蛍光を発光し得るようにこの有機EL素子の透明電極または電極に対応して配設した蛍光体層とを備えた多色発光装置において、

支持基板が、有機EL素子の発光部分に対応する部分に空隙を有し、その空隙に蛍光体が埋設されてなり、かつ

蛍光体層および支持基板と有機EL素子との間に透明な絶縁層が配設されてなることを特徴とする多色発光装置。

【請求項2】 前記支持基板が、金属からなるものであることを特徴とする請求項1記載の多色発光装置。

【請求項3】 前記支持基板が、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム、タンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなることを特徴とする請求項1または2記載の多色発光装置。

【請求項4】 前記支持基板および／または透明な絶縁層が、無機酸化物を含むものであることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項記載の多色発光装置。

【請求項5】 前記支持基板および／または透明な絶縁層が、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタンからなる群から選ばれる一種以上の無機酸化物を含むものであることを特徴とする請求項1～4のいずれか1項記載の多色発光装置。

【請求項6】 前記支持基板および／または透明な絶縁層が、ガラス板であることを特徴とする請求項1～4のいずれか1項記載の多色発光装置。

【請求項7】 支持基板に、有機EL素子の発光を吸収して異なった可視光の蛍光を発光する蛍光体層を配置し、かつ有機EL素子をその透明電極または電極が蛍光体層に対応するように配設する多色発光装置の製造方法において、

1) 支持基板の一の面上に、透明な絶縁層および透明電極を順次積層する工程、

2) 支持基板の他の面の、有機EL素子の発光部分に対応する部分をエッチングして、支持基板に空隙を形成する工程、

3) 透明電極をパターニングする工程、

4) 支持基板の空隙に蛍光体層を埋設する工程

5) 透明電極上に有機物層、および電極を順次積層して有機EL素子を作製する工程、

を有することを特徴とする多色発光装置の製造方法。

【特許請求の範囲】

において、

1) ガラス板からなる支持基板の一の面上に透明電極を成膜する工程、

2) 支持基板の他の面の、有機EL素子の発光部分に対応する部分をエッチングして、支持基板に空隙を形成する工程、

3) 透明電極をパターニングする工程、

4) 支持基板の空隙に蛍光体層を埋設する工程、

5) 透明電極上に有機物層、および電極を順次積層して有機EL素子を作製する工程、

を有することを特徴とする多色発光装置の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、多色発光装置およびその製造方法に関する。さらに詳しくは各種発光型のマルチカラーまたはフルカラーの薄型ディスプレイに好適に用いられる多色発光装置およびその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】エレクトロルミネッセンス素子（以下EL素子という）は、自己発光のため視認性が高く、また完全固体のため耐衝撃性に優れるという特徴を有しており、現在、無機、有機化合物を発光層に用いた様々なEL素子が提案され、実用化が試みられている。この実用化の一つとして、EL素子を用いた多色発光装置を挙げることができる。

【0003】この多色発光装置としては、まず白色発光の無機EL素子に三原色（赤、緑、青）のカラーフィルタを設置したもの、三原色に発光する無機EL素子を順次パターニングして三原色に発光するEL素子を平面に分離配置したものがある（Semicond. Sci. Technol. 6（1991）305-323）。しかしながら、白色光を三原色のカラーフィルタで分解すると、三原色の一色の発光効率が、高々白色のその3分の1（33％）に限定されてしまうという問題があった。さらに、白色光を効率よく発光させることができる素子そのものは、まだ得られていないのが現状である。

【0004】一方、EL素子のパターニングにはフォトリソグラフィ法が使用されているが、このようなウェットプロセスではEL素子の効率および安定性の低下が甚だしいことが知られている。EL素子の中でも、有機EL素子が高輝度、高効率の発光素子として有望であることが知られている。特に、発光層が有機物であるため、種々の発光色が有機物の分子設計により得られる可能性が高く、有機EL素子の実用化の一つとして、多色発光装置への応用が期待されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、有機EL素子においても、外部からの水蒸気、酸素、および有機物のガス等の化学的要因により、黒点の発生に付随し

て輝度の低下等の劣化が起り、また、素子構成が低分子の有機物の積層体であるため、熱、または衝撃等の物理的（機械的）要因により比較的破壊しやすいという問題があった。したがって、多色化のために、三原色（RGB）の発光をする各々の有機EL素子を平面的に分離配置する方法は、フォトリソグラフィ法のように、ウェットな、または熱処理のあるプロセスでは困難であった。従って、近年では、有機EL素子の発光部分に対応する部分（積層または並列）に、有機EL素子の発光を吸収して可視光の蛍光を発光する蛍光体層を設置する技術が開示されている（特開平3-152897号公報）。この技術によれば、例えば有機EL素子の青色または青緑色の発光に対し、より長波長の可視光への蛍光に変換が可能である。この技術の応用として緑または赤色に変換できる蛍光体層を平面的に分離配置した多色（三原色）発光装置が開示されている（特開平5-258860号公報）。

【0006】ここで、蛍光体層を設置するメリットは、カラーフィルタを設置した場合と比較して高効率の多色発光が期待できることにある。すなわち、有機EL素子からの青色発光に対して、蛍光体の青色発光の吸収効率が少なくとも80%以上であるとして、次に吸収した光に対して少なくとも80%以上の効率で蛍光を発光する各種の蛍光材料が知られている。従って、80%の吸収効率と80%の蛍光効率とを仮定すると、有機EL素子の青色発光の64%が長波長の可視光に変換することができる計算になる。

【0007】このようにして有機EL素子と蛍光体層を用いて多色発光装置を得ることができるが、特開平5-258860号公報によると、その多色発光装置の構成として以下のように提案している。すなわち、図13に示すように透明基板上11に有機EL素子1の発光を吸収してそれぞれ緑色、赤色の蛍光を発光する蛍光体4R、4Gを平面的に分離配置し、その蛍光体4R、4Gを含む透明基板11上に有機モノマーまたはオリゴマーの重合および／または架橋物、ゾルゲルガラス技法による透明な電気絶縁性硬質平面化層（保護層）7をスピンキャストして積層し、その平面化層7上に有機EL素子1の透明電極1aを配置している。

【0008】また、別の構成として、透明な電気絶縁性である平坦な硬質要素を蛍光体上にスピンキャストする代わりに、単に蛍光体表面に配置したり、基板の上面に蛍光体を付着させる代わりに平面化層の機能を発揮する硬質要素の下面に蛍光体を付着させることも挙げられているが（図10）、図13の構成の方が好ましいと記載されている。しかし、図13に示す構成の場合、有機モノマーまたはオリゴマーの重合および／または架橋物の平面化層上に有機EL素子の透明電極を配置しただけでは、平面化層の有機物に微量に吸着または含まれている水蒸気、酸素またはモノマー等のガスによって、有機E

L素子の発光寿命を著しく低下させ、不均一な発光とならざるを得ないという問題があった。また、ゾルゲルガラス技法による平面化層の作製には通常400℃以上の高温処理が必要で、このため、有機物の蛍光体を劣化させることになる。そこで、蛍光体を劣化させない熱処理（最大250℃程度）で、ゾルゲルガラス平面化層を作製すると、水または有機物が残存しているため、先と同じ理由で、有機EL素子の発光寿命を著しく低下させるという問題があった。また、前記の別構成の場合、硬質要素について明確な説明が必ずしも十分になされなかった。

【0009】一方、無機EL素子のガラス基板の裏面にカラーフィルタを印刷したガラス板を配置する方法が開示されている（特開昭57-119494号公報）。しかし、この方法では、先に記載したようにカラーフィルタによる発光効率のロスが容易に予想されることに加えて、無機EL素子とカラーフィルタとを独立して製造するため、例えば無機EL素子の基板の厚さを厚くしないと（おおよそ700μm以上）、基板のそり、ゆがみの問題が発生し、安定してEL素子を作製することができなかった。しかもその基板を厚くした結果、カラーフィルタとEL素子とのギャップが広がり、多色発光させる場合、所望の発光色以外の発光色が漏れ出て、視野角が著しく低下するという問題があった。

【0010】本発明は上述の問題に鑑みなされたものであり、優れた発光効率、視認性、および発光寿命を有するとともに、耐衝撃性にも優れた有機EL多色発光装置を提供すること、およびこの多色発光装置の発光効率等の性能を低下させることなく安定して、製造することができる方法を提供することを目的とする。

【0011】

【発明が解決しようとする手段】上記目的を達成するため、本願発明によれば、支持基板と、この支持基板上に配設した有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子と、この有機EL素子からの発光を吸収して異なった可視光の蛍光を発光し得るようにこの有機EL素子の透明電極または電極に対応して配設した蛍光体層とを備えた多色発光装置において、支持基板が、有機EL素子の発光部分に対応する部分に空隙を有し、その空隙蛍光体が埋設されてなり、かつ蛍光体層および支持基板と有機EL素子との間に透明な絶縁層が配設されてなることを特徴とする多色発光装置が提供される。

【0012】また、その好ましい態様として、前記支持基板が、金属からなるものであることを特徴とする多色発光装置が提供される。

【0013】また、その好ましい態様として、前記支持基板が、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム、タンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなることを特徴とす

る多色発光装置が提供される。

【0014】また、その好ましい態様として、前記支持基板および／または透明な絶縁層が、無機酸化物を含むものであることを特徴とする多色発光装置が提供される。

【0015】また、その好ましい態様として、前記支持基板および／または透明な絶縁層が無機酸化物が、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタンからなる群から選ばれる一種以上の酸化物を含むものであることを特徴とする多色発光装置が提供される。

【0016】また、その好ましい態様として、前記支持基板および／または透明な絶縁層が、ガラス板であることを特徴とする多色発光装置が提供される。

【0017】また、支持基板に、有機EL素子の発光を吸収して異なった可視光の蛍光を発光する蛍光体層を配置し、かつ有機EL素子をその透明電極または電極が蛍光体層に対応するように配設する多色発光装置の製造方法において、

- 1) 支持基板の一の面上に、透明な絶縁層および透明電極を順次積層する工程、
 - 2) 支持基板の他の面の、有機EL素子の発光部分に対応する部分をエッチングして、支持基板に空隙を形成する工程、
 - 3) 透明電極をパターニングする工程、
 - 4) 支持基板の空隙に蛍光体層を埋設する工程
 - 5) 透明電極上に有機物層、および電極を順次積層して有機EL素子を作製する工程、
- を有することを特徴とする多色発光装置の製造方法が提供される。

【0018】さらに、支持基板に、有機EL素子の発光を吸収して異なった可視光の蛍光を発光する蛍光体層を配置し、かつ有機EL素子をその透明電極または電極が蛍光体層に対応するように配設する多色発光装置の製造方法において、

- 1) ガラス板からなる支持基板の一の面上に透明電極を成膜する工程、
 - 2) 支持基板の他の面の、有機EL素子の発光部分に対応する部分をエッチングして、支持基板に空隙を形成する工程、
 - 3) 透明電極をパターニングする工程、
 - 4) 支持基板の空隙に蛍光体層を埋設する工程、
 - 5) 透明電極上に有機物層、および電極を順次積層して有機EL素子を作製する工程、
- を有することを特徴とする多色発光装置の製造方法が提供される。

【0019】

【発明の実施の形態】以下、本発明の多色発光装置およびその製造方法の実施の形態を具体的に説明する。本発明の有機EL多色発光装置としては、有機EL素子の発光が減衰、散乱されず、効率よく蛍光体層に吸収され、

かつ、発光した可視光の蛍光が減衰、散乱されず、外部へ取り出せる構成であることが必要である。本発明の多色発光装置の基本的な構成としては、図1に示すものを挙げることができる。すなわち、支持基板2が、有機EL素子1の発光部分に対応する部分に空隙2aを有し、その空隙2aに蛍光体層4および支持基板2と有機EL素子1との間に透明な絶縁層3が配設されている。このような構成とすることにより、有機EL素子1の有機物層（発光層）1bから発光した光は、透明電極1a、透明な絶縁層3を透過し、蛍光体層4に吸収され、有機EL素子1の光よりも長波長の蛍光（異なった可視光）を発光して、視認される。なお、空隙2aに埋設された蛍光体層は、複数の異なる蛍光体層であってもよい。

【0020】この構成をさらに応用した例として、図1における蛍光体層4を複数個並置した図2に示すものを挙げることができる。ここで、蛍光体層4は、異なった蛍光を発する層であり、例えば、有機EL素子1の発光色が青の場合には、青色光を吸収して緑色領域の蛍光を発する蛍光体層4G、青色光を吸収して赤色領域の蛍光を発する蛍光体層4Rを支持基板2の空隙2aにそれぞれ埋設する。一方蛍光体層4を埋設しない空隙2aを残す。その結果、蛍光体層4が埋設されていない空隙2aから有機EL素子1の青色光がそのまま発光し、埋設された蛍光体層4G、4Rからは、それぞれ緑色領域の光、赤色領域の光が発光し、三原色の発光が可能となり、マルチカラーまたはフルカラー化（多色発光）を実現することができる。

【0021】また、図3に示すように、有機EL素子1の発光色が青緑の場合には、青色純度を高めるために、前記蛍光体層が埋設されていない空隙2aに青色カラーフィルタ5Bを埋設してもよい。

【0022】また、図4に示すように、蛍光体層からの蛍光色の色純度を高めるために、蛍光体層の蛍光を発する側に、それぞれ緑色カラーフィルタ5G、赤色カラーフィルタ5Rを配置してもよい。

【0023】また、図5および図6に示すように、支持基板2の外光による反射を防止し、多色発光の視認性を高めるために、例えば青色カラーフィルタ5Bまたは、蛍光体層4の間にブラックマトリックス6を配置してもよい。さらに、ここで各空隙2aの空隙側面2bは、不透明なものとするのが好ましく、光を反射または、散乱させるような面とすれば、さらに好ましい。このような構成とすることにより、図6に示すように蛍光体層4からの発光の横漏れを防止し、効率よく光を取り出し、視認性に優れた多色発光装置を得ることができる。

【0024】なお、透明な絶縁層3と支持基板2との接合は、特に制限はなく、例えば単に、支持基板2上への透明な絶縁層3の物理的な吸着であったり、接着剤による化学的な接着であってもよい。透明な絶縁層3の支持基板2への接合力を高めるために、支持基板2の表面を

粗して微小の凹凸を作製し、透明な絶縁層3の吸着面積を大きくしてもよい。

【0025】図7に示すように、透明な絶縁層3として、例えばガラス板を支持基板2に接合させる場合は、接着層（接着剤）12を介して化学的に接着させてもよい。透明な絶縁層3と支持基板2とが同一の基板（例えばガラス板）であれば接着層（接着剤）12を介することは必ずしも必要ではない。また、支持基板2の表面処理（例えば酸化処理）によって、支持基板2の表面に透明な絶縁層を形成しておいてもよい。

【0026】さらに、図8に示すように、蛍光体層4上（またはカラーフィルタ5B、もしくはブラックマトリックス6上）に透明な保護層8を配置してもよい。

【0027】また、図9に示すように、有機EL素子1上に、ガラス板等の封止板9を設け、その間隙に不活性流体（窒素、アルゴン等の不活性ガス、フッ化炭化水素等）10を封入させて、封止するのが一般的である。

【0028】以下、本発明に用いられる構成要素について具体的に説明する。

①支持基板

本発明で用いられる支持基板としては、透明性を問わず、多色発光装置を支えるに十分な剛直な材料が好ましい。特に、高精細な表示をする場合には、有機EL素子と蛍光体層とのギャップが大きいと有機EL素子の発光が隣接する蛍光体層に吸収され所望の発光色が得られず、視野角を小さくしてしまう場合がある。そのため、透明な絶縁層の厚さを小さくする必要があるが、厚さを小さくすると、多色発光装置の耐衝撃性等の機械的強度を弱めることになる。本発明では、支持基板を配置することにより多色発光装置を補強して耐衝撃性等の機械的強度を高めている。

【0029】具体的な材料としては、例えば、ガラス板、セラミック板、プラスチック板（ポリカーボネート、アクリル、塩化ビニル、ポリエチレンテレフタレート、ポリイミド、ポリエステル樹脂等）、金属板、および後述する絶縁層と同じ材料からなる板等を挙げることができるが、もちろん、耐衝撃性等の機械的強度に優れた金属が好ましい。金属を用いることにより透明な絶縁層の厚さが小さく、支持基板の金属の厚さが小さい場合でも相当の補強効果がある。具体的には、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウム、タンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなる材料が好ましい。このような材料は、エッチング処理等により、空隙形成の加工性に優れ、しかも支持基板として剛直な材料であって、コスト的に安価な材料であるので好ましい。また、先述のように、空隙を形成した際に、空隙の側面に金属光沢を出すこともできるので、蛍光体層からの発光を反射または散

乱して、効率よく光を取り出し視認性に優れた多色発光装置を得ることができる。支持基板の板厚は、特に制限はないが、高精細表示を行う多色発光装置については空隙の形成を高精細にしなければならないので、多色発光装置を支える剛直さがある範囲であって、可能な限り薄くすることが必要である。通常は5 μ m～3mmの範囲であり、好ましくは、7 μ m～700 μ mさらに好ましくは、10 μ m～300 μ mである。

【0030】②透明な絶縁層

10 有機EL素子の発光が減衰または散乱されず効率よく蛍光体層に吸収されるような透明な層（可視光の透過率50%以上）であって、電氣的に絶縁性の層であることが必要であり、前記条件を満たすならば先に記載した支持基板の材料であってもよい。有機物としては、具体的には、光硬化型樹脂および/または熱硬化型樹脂のように、アクリレート系、メタクリレート系の重合、架橋硬化物を挙げることができる。また、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂、およびポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を挙げることができる。また、フッ素樹脂であってもよい。例えば、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリクロロトリフルオロエチレン（PCTFE）、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体、ポリフッ化ビニリデン（PVdF）、ポリフッ化ビニル（PVF）等を挙げることができる。

20 30 【0031】一方、無機物としては特に制限はないが、例えば無機酸化物、窒化物、フッ化物等を挙げることができる。ここで、有機EL素子の発光寿命を低下させるものとして、水蒸気、酸素またはモノマー等の有機物のガスが問題となるが、本発明に用いられる透明な絶縁層は、その物性として、水蒸気、酸素またはモノマー等の有機物のガスを発生させる要因を保有していないこと、および外部からの侵入を遮断し得ることが要求される。

具体的には、特に透明な絶縁層中に含まれている水が熱分析（示差熱分析DTA、示差操作熱量測定DSC）により、0.1重量%以下であり、水蒸気または酸素の透明な絶縁層に体するガス透過係数が、JIS K7126の気体透過度試験方法等により、それぞれ10⁻¹¹ cc \cdot cm/cm² \cdot s \cdot cmHg以下であれば、黒点の発生などによる有機EL素子の発光寿命の低下を制御することができる。このような物性を有する材料としては表1および表2に示す無機酸化物が好ましい。

【0032】

【表1】

ガラス組成系	
1) $R_2O-R'O-SiO_2$ $\cdot Na_2O-CaO/MgO-SiO_2$ (ソーダ石灰ガラス) $\cdot Na_2O/K_2O-BaO/SrO-SiO_2$ $\cdot Na_2O/K_2O-CaO/ZnO-SiO_2$	
2) $R_2O-PbO-SiO_2$ $\cdot K_2O/Na_2O-PbO-SiO_2$ (鉛ガラス)	
3) $R_2O-B_2O_3-SiO_2$ $\cdot Na_2O-B_2O_3-SiO_2$ (ホウケイ酸ガラス) $\cdot K_2O-B_2O_3-SiO_2$	
4) $R'O-B_2O_3-SiO_2$ $\cdot PbO-B_2O_3-SiO_2$ $\cdot PbO/ZnO-B_2O_3-SiO_2$ $\cdot PbO-B_2O_3-SiO_2 + (ファイラー)$ $\cdot ZnO-B_2O_3-SiO_2$	
5) $R'O-Al_2O_3-SiO_2$ $\cdot CaO/MgO-Al_2O_3-SiO_2$ (アルミナ酸塩ガラス) $\cdot MgO-Al_2O_3-SiO_2$ $\cdot PbO/ZnO-Al_2O_3-SiO_2$	
6) $R_2O-Al_2O_3-SiO_2$ $\cdot Li_2O-Al_2O_3-SiO_2$ $\cdot Na_2O-Al_2O_3-SiO_2$	
7) $R'O-TiO_2-SiO_2$ $\cdot BaO-TiO_2-SiO_2$	
8) $R_2O-ZrO_2-SiO_2$ $\cdot Na_2O/Li_2O-ZrO_2-SiO_2$	
9) $R'O-P_2O_5-SiO_2$ $\cdot CaO-P_2O_5-SiO_2$	
10) $R'O-SiO_2$ $\cdot CaO/BaO/PbO-SiO_2$	
11) SiO_2	
12) $R_2O-R'O-B_2O_3$ $\cdot Li_2O-BeO-B_2O_3$	
13) $R'O-R_2'O_3-B_2O_3$ $\cdot CaO/BaO-Al_2O_3-B_2O_3$ $\cdot CaO/PbO-Lu_2O_3-B_2O_3$	
14) $R_2O-Al_2O_3-P_2O_5$ $\cdot K_2O-Al_2O_3-P_2O_5$	
15) $R'O-Al_2O_3-P_2O_5$ $\cdot BaO/CaO-Al_2O_3-P_2O_5$ $\cdot ZnO-Al_2O_3-P_2O_5$	

R' : 1価の元素
 R : 2価の元素
 R : 3価の元素

区 分	組 成 物 (主として1-3成分系として表わす)
1 単純酸化物	SiO_2 , B_2O_3 , GeO_2 , As_2O_3
2 ケイ酸塩	$\text{Li}_2\text{O}-\text{SiO}_2$, $\text{Na}_2\text{O}-\text{SiO}_2$, $\text{K}_2\text{O}-\text{SiO}_2$, $\text{MgO}-\text{SiO}_2$, $\text{CaO}-\text{SiO}_2$, $\text{BaO}-\text{SiO}_2$, $\text{PbO}-\text{SiO}_2$, $\text{Na}_2\text{O}-\text{CaO}-\text{SiO}_2$, $\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$
3 ホウ酸塩	$\text{Li}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{Na}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{K}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{MgO}-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{CaO}-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{PbO}-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{Na}_2\text{O}-\text{CaO}-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{ZnO}-\text{PbO}-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{Al}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{SiO}_2-\text{B}_2\text{O}_3$
4 リン酸塩	$\text{Li}_2\text{O}-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{Na}_2\text{O}-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{MgO}-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{CaO}-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{BaO}-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{K}_2\text{O}-\text{BaO}-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{SiO}_2-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{B}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{V}_2\text{O}_5-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$, $\text{WO}_3-\text{P}_2\text{O}_5$
5 ゲルマン酸塩ガラス	$\text{Li}_2\text{O}-\text{GeO}_2$, $\text{Na}_2\text{O}-\text{GeO}_2$, $\text{K}_2\text{O}-\text{GeO}_2$, $\text{B}_2\text{O}_3-\text{GeO}_2$, $\text{SiO}_2-\text{GeO}_2$
6 タングステン酸塩	$\text{Na}_2\text{O}-\text{WO}_3$, $\text{K}_2\text{O}-\text{WO}_3$
7 モリブデン酸塩	$\text{Na}_2\text{O}-\text{MoO}_3$, $\text{K}_2\text{O}-\text{MoO}_3$, $\text{Li}_2\text{O}-\text{MoO}_3$
8 テルル酸塩	$\text{Na}_2\text{O}-\text{TeO}_2$
9 ホウケイ酸塩	$\text{Na}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$
10 アルミノケイ酸塩	$\text{Na}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$, $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$
11 アルミノホウ酸塩	$\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$, $\text{ZnO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$
12 アルミノホウケイ酸塩	$\text{Na}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$
13 フッ化物	BeF_2 , $\text{NaF}-\text{BeF}_2$, $\text{ZrF}_4-\text{BaF}_2-\text{ThF}_4$, $\text{GdF}_3-\text{BaF}_2-\text{ZrF}_4$
14 フッリン酸塩	$\text{Al}(\text{PO}_3)_3-\text{AlF}_3-\text{NaF}-\text{CaF}_2$
15 オキシハロゲン化物	$\text{Ag}_2\text{O}-\text{AgI}-\text{P}_2\text{O}_5$
16 オキシナイトライド	$\text{MgO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{AlN}-\text{SiO}_2$

【0034】無機物の中でも、酸化ケイ素(SiO_2)、酸化アルミニウム(Al_2O_3)、酸化チタン(TiO_2)、酸化イットリウム(Y_2O_3)、酸化ゲルマニウム(GeO_2)、酸化亜鉛(ZnO)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、ほう酸(B_2O_3)、酸化ストロンチウム(SrO)、酸化バリウム(BaO)、酸化鉛(PbO)、ジルコニア(ZrO_2)、酸化ナトリウム(Na_2O)、酸化リチウム(Li_2O)、酸化カリウム(K_2O)等の無機酸化物を挙げることができるが、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタンが、その層(膜)の透明性が高く、その製膜温度が比較的低温(250℃以下)であるので、製膜の面で好ましい。また、無機酸化物の中でもガラス板(すなわち、ガラス状態となった無機酸化物)は、特に水蒸気、酸素またはモノマー等の劣化ガスを遮断する効果が大きいのでより好ましい。具体的には、ソーダー石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸塩ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス等を挙げることができる。なお、ここで無機酸化物層は、その組成として、無機酸化

物を主に含むものであればよく、窒化物(例えば Si_3N_4)や、フッ化物が含まれていてもよい。ガラス板を含めた無機酸化物が好ましいのは、具体的に有機EL素子の透明電極として、通常よくつかわれるITO(インジウム錫酸化物)等の無機の導電性透明材料を用いることができるためであり、また相互の親和性がよく密着性がよいためである。また、透明な絶縁層としては、有機EL素子側に無機(酸化物)層、支持基板側に有機物層の二層として、有機EL素子の劣化も防止し、かつ蛍光体層を支持するようにしてもよい。このような透明な絶縁層の厚さは、高精細な表示を行なう多色発生装置については可能な限り小さくすることが必要である。ただし、水蒸気または酸素のガス透過を抑制するためには0.01μm以上の厚さが必要である。なお、蛍光体層を支持しなければならないので、通常は1μm~3mm、より好ましくは、10μm~200μmである。

【0035】③接着層

本発明においては、必要に応じて接着層が用いられる。具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化および熱硬

化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステルなどの湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系などの光硬化、熱硬化および化学硬化型（二液混合）を挙げることができる。接着剤の粘度としては低粘度（約100cP以下）のものが貼り合わせ時に気泡がかみこまず、均一に貼り合わせが可能であるので、好ましい。この接着層の厚さは、0.1μmから200μm程度が好ましく、蛍光体層と有機EL素子のギャップによる有機EL素子の発光漏れを限なく低減する（視野角の向上）ため、なるべく膜厚を小さくすることが好ましい。

【0036】④蛍光体層

本発明に用いられる蛍光体層としては、例えば、蛍光色素、蛍光顔料のみからなるもの、蛍光色素、蛍光顔料をバインダー樹脂中に溶解または分散させたものであって、固体状態のものを挙げることができる。この蛍光体層は、支持基板の空隙に埋設される。具体的には近紫外光からは紫色の有機EL素子の発光から青色発光に変換する蛍光色素としては、1,4-ビス（2-メチルスチリル）ベンゼン（以下Bis-MSB）、トランス-4,4'-ジフェニルスチルベン（以下DPS）等のスチルベン系色素、7-ヒドロキシ-4-メチルクマリン（以下クマリン4）等のクマリン系色素を挙げることができる。次に、青色または青緑色の有機EL素子の発光から緑色発光に変換する蛍光色素については、例えば、2,3,5,6-1H,4H-テトラヒドロ-8-トリプロルメチルキノリジノ（9,9a,1-g h）クマリン（以下クマリン153）、3-（2'-ベンゾチアゾリル）-7-ジエチルアミノクマリン（以下クマリン6）、3-（2'-ベンズイミダゾリル）-7-N,N-ジエチルアミノクマリン（以下クマリン7）等のグマリン色素、他クマリン色素系染料であるがベシックイエロー51、また、ソルベントイエロー11、ソルベントイエロー116等のナフタルイミド色素を挙げることができる。また、青色から緑色の有機EL素子の発光から橙色から赤色発光に変換する蛍光色素については、例えば、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-（p-ジメチルアミノスチリル）-4H-ピラン（以下DCM）等のシアニン系色素、1-エチル-2-（4-（p-ジメチルアミノフェニル）-1,3-ブタジエニル）-ビリジニウム-パークロレート（以下ビリジン1）等のビリジン系色素、ローダミンB、ローダミン6G、ローダミン101、スルホローダミン101等のローダミン系色素、他にオキサジン系、ピラジン系が挙げられる。さらに、各種染料（直接染料、酸性染料、塩基性染料、分散染料等）も蛍光性があれば可能である。また、前記蛍光色素をポリメタクリル酸エステル、ポリ塩化ビニル、塩ビ酢共重合体、アルキッド樹脂芳香族スルホンアミド樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂等の樹脂中にあらかじめ練りこんで顔料（蛍

光顔料）化したものでもよい。また、これらの蛍光色素または蛍光顔料は、必要に応じて、単独または混合して用いる。特に赤色への蛍光変換効率が低いので、上記色素または顔料を混合して用いて、有機EL素子の発光から蛍光への変換効率を高めることもできる。一方、バインダー樹脂は、透明な（可視光50%以上）材料が好ましい。たとえば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂が挙げられる。なお、蛍光体層を平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィ法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。例えば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ（メジウム）が選ばれる。例えば、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキッド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。蛍光体層の膜厚は、有機EL素子の発光を十分に吸収し、蛍光を発生する機能を妨げるものでなければ制限はなく、通常蛍光色素により若干異なるが、10nm~1mm程度が適当である。また、特に蛍光体層が蛍光色素とバインダー樹脂（蛍光顔料の樹脂部分を含む）からなるものは、蛍光色素の濃度が、蛍光の濃度消光を起こすことなく、かつ、有機EL素子の発光を十分吸収できる範囲であればよい。蛍光色素の種類によるが、使用するバインダー樹脂に対して1~10⁻⁴mol/kg程度が適当である。なお、特に有機EL素子の発光から赤色への蛍光変換効率が低いので、蛍光体層を重ねて蛍光変換効率を上げることも可能である。

【0037】⑤カラーフィルタおよびブラックマトリックス

本発明において必要に応じて用いられるカラーフィルタおよびブラックマトリックスは、例えば、公知の市販材料を選んで、フォトリソグラフィ法または印刷法等の方法で所望の位置に所望のパターニングを行うことによって形成することができる。

【0038】⑥保護層

本発明において、必要に応じて用いられる保護層は、多色発光装置の外側にある蛍光体層やカラーフィルタ（ブラックマトリックスを含む）が物理的に傷つくこと、外部の環境因子（水、酸素、光）により劣化するのを保護するために用いられる。その材料としては、透明な（可視光50%以上）材料であることが好ましい。具体的

は、絶縁層と同様に、光硬化型樹脂および／または熱硬化型樹脂のように、アクリレート系、メタクリレート系の重合、または架橋硬化物を挙げることができる。また、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマー、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を挙げることが

【0039】の有機EL素子

本発明に用いられる有機EL素子においては、有機物層として、再結合領域および発光領域を少なくとも有するものが用いられる。この再結合領域および発光領域は、通常発光層に存在するため、本発明においては、有機物層として発光層のみを用いてもよいが、必要に応じ、発光層以外に、たとえば正孔注入層、電子注入層、有機半

導体層、電子障壁層、付着改善層なども用いることができる。

【0040】次に本発明に用いられる有機EL素子の代表的な構成例を示す。もちろん、これに限定されるものではない。

- (1) 透明電極(陽極)/発光層/電極(陰極)
 - (2) 透明電極(陽極)/正孔注入層/発光層/電極(陰極)
 - (3) 透明電極(陽極)/発光層/電子注入層/電極(陰極)
 - (4) 透明電極(陽極)/正孔注入層/発光層/電子注入層/電極(陰極)
 - (5) 陽極/有機半導体層/発光層/陰極
 - (6) 陽極/有機半導体層/電子障壁層/発光層/陰極
 - (7) 陽極/正孔注入層/発光層/付着改善層/陰極
- などの構造を挙げることができる。これらの中で、通常(4)の構成が好ましく用いられる。

【0041】の-1. 透明電極(例えば陽極)

陽極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、ITO、SnO₂、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等

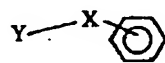
の方法で、薄膜を形成させることにより作製することができる。このように発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1μm、好ましくは10~200nmの範囲で選択される。

【0042】の-2. 発光層

有機EL素子の発光材料は主に有機化合物であり、具体的には所望の色調により次のような化合物が挙げられる。まず、紫外域から紫色の発光を得る場合には、下記の一般式であらわされる化合物が挙げられる。

【0043】

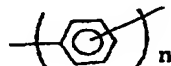
【化1】



【0044】この一般式において、Xは下記化合物を示す。

【0045】

【化2】



【0046】ここでnは、2、3、4または5である。また、Yは下記化合物を示す。

【0047】

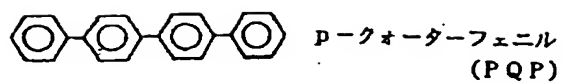
【化3】



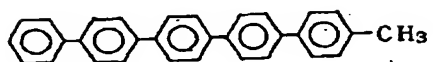
【0048】上記化合物のフェニル基、フェニレン基、ナフチル基に炭素数1~4のアルキル基、アルコキシ基、水酸基、スルホニル基、カルボニル基、アミノ基、ジメチルアミノ基またはジフェニルアミノ基等が単独または複数置換したものであってもよい。また、これらは互いに結合し、飽和5員環、6員環を形成してもよい。また、フェニル基、フェニレン基、ナフチル基にパラ位で結合したものが、結合性がよく平滑な蒸着膜の形成のために好ましい。具体的には以下の化合物である。特に、p-クォーターフェニル誘導体、p-キルクフェニル誘導体が好ましい。

【0049】

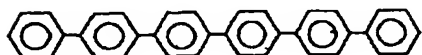
【化4】

(1) ¹⁷

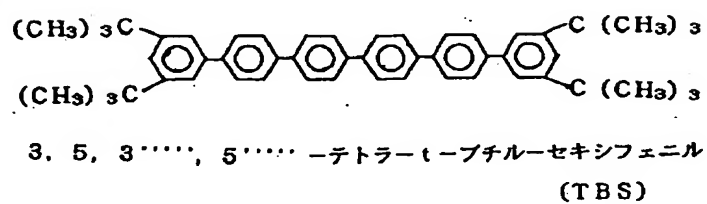
(2)



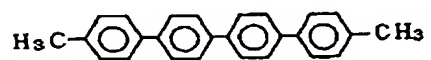
(3)



(4)



(5)



[0050]

[化5]

(11)

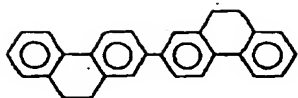
20

(6)

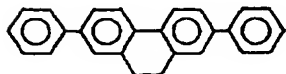
19

[0051]

[化6]

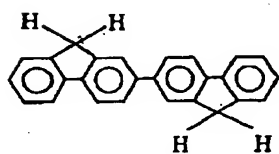


(7)



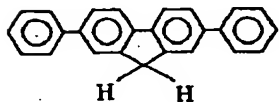
10

(8)

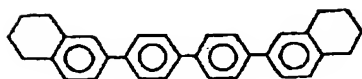


(9)

20

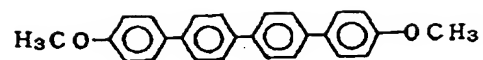


(10)



30

(11)



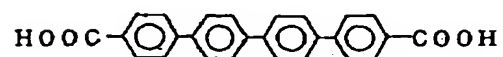
(12)



(13)



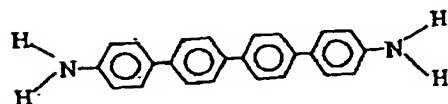
(14)



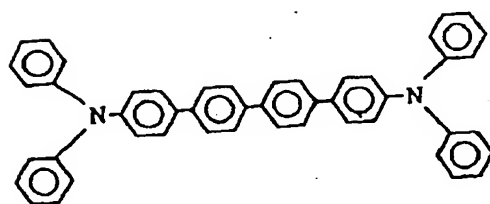
[0052]

* * 【化7】

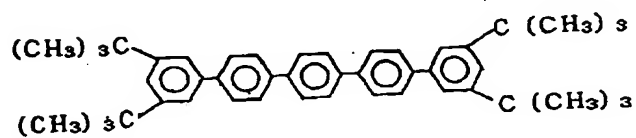
(15)



(16)



(17)



チル-p-クインクフェニル
(TBQ)

【0053】次に、青色から緑色の発光を得るためには、例えば、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物を挙げることができる。

【0054】具体的に化合物名を示せば、例えば、特開昭59-194393号公報に開示されているものを挙げることができる。その代表例としては、2, 5-ビス(5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)-1, 3, 4-チアジアゾール、4, 4'-ビス(5, 7-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)スチルベン、4, 4'-ビス[5, 7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]スチルベン、2, 5-ビス(5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン、2, 5-ビス[5- α , α -ジメチルベンジル-2-ベンゾオキサゾリル]チオフエン、2, 5-ビス[5, 7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]-3, 4ジオフエニルチオフエン、2, 5-ビス(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフエン、4, 4'-ビス(2-ベンゾオキサゾリル)ビフェニル、5-メチル-2-[2-(4-(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)フェニル)ビニル]ベンゾオキサゾール、2-[2-(4-クロロフェニル)ビニル]ナフト[1, 2-d]オキサゾール等のベンゾオキサゾール系、2-2'-(*p*-フェニレンジビニレン)-ビスベンゾチアゾール等のベンゾチアゾール系、2-[2-(4-(2-ベンゾイミダゾリル)フェニル)ビニル]ベンゾイミダゾール、2-[2-(4-カルボキシフェニル)ビニル]ベンゾイミダゾール等のベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤を挙げることができる。さらに、他の有用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・ダイズ1971, 628~637頁および640頁に列挙されている。

【0055】前記キレート化オキシノイド化合物としては、例えば特開昭63-295695号公報に開示されているものを用いることができる。その代表例としては、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)マグネシウム、ビス(ベンゾ[f]-8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノール)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カルシウム、ポリ[亜鉛(II)-ビス(8-ヒドロキシ-5-キノリノール)メタン]等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエビントリジオン等を挙げることができる。

【0056】また、前記スチリルベンゼン系化合物とし

ては、例えば欧州特許第0319881号明細書や欧州特許第0373582号明細書に開示されているものを用いることができる。その代表例としては、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(3-メチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(4-メチルスチリル)ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1, 4-ビス(2-エチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(3-エチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)-2-メチルベンゼン、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)-2-エチルベンゼン等を挙げることができる。

【0057】また、特開平2-252793号公報に開示されているジスチリルピラジン誘導体も発光層の材料として用いることができる。その代表例としては、2, 5-ビス(4-メチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス(4-エチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ナフチル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス(4-メトキシスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(4-ヒフェニル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ビレニル)ビニル]ピラジン等を挙げることができる。その他のものとして、例えば欧州特許第0387715号明細書に開示されているポリフェニル系化合物も発光層の材料として用いることもできる。

【0058】さらに、上述した蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、およびスチリルベンゼン系化合物等以外に、例えば12-フタロベリノン(J. Appl. Phys., 第27巻, L713(1988年))、1, 4-ジフェニル-1, 3-ブタジエン、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン(以上Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、ナフタルイミド誘導体(特開平2-305886号公報)、ベリレン誘導体(特開平2-189890号公報)、オキサジアゾール誘導体(特開平2-216791号公報、または第38回応用物理学関係連合講演会で浜田らによって開示されたオキサジアゾール誘導体)、アルダジン誘導体(特開平2-220393号公報)、ピラジリン誘導体(特開平2-220394号公報)、シクロペンタジエン誘導体(特開平2-289675号公報)、ピロロピロール誘導体(特開平2-296891号公報)、スチリルアミン誘導体(Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、クマリン系化合物(特開平2-191694号公報)、国際公開公報WO90/13148やAppl. Phys. Lett., vol 58, 18, P1982(1991)に記載されているような高分子化合物等も、発光層の材料として用いることができる。

【0059】本発明では、特に発光層の材料として、芳香族ジメチリデン系化合物(欧州特許第0388768号明細書や特開平3-231970号公報に開示のもの)を用いることが好ましい。具体例としては、1, 4-フェニレンジメチリデン、4, 4'-フェニレンジメ

チリジン、2,5-キシレンジメチリジン、2,6-ナフチレンジメチリジン、1,4-ビフェニレンジメチリジン、1,4-p-テレフェニレンジメチリジン、9,10-アントラセンジイルジメチリジン、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル、(以下、DTBPBBiと略記する)、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル(以下DPVBiと略記する)等、およびそれらの誘導体を挙げることができる。

【0060】さらに、特開平5-258862号公報等に記載されている一般式(R_2-Q), $-AL-O-L$ であらわされる化合物も挙げられる。(上記式中、Lはフェニル部分を不運でなる炭素原子6~24個の炭化水素であり、O-Lはフェニラート配位子であり、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、 R_2 はアルミニウム原子に置換8-キノリノラート配位子が2個上回り結合するのを立体的に妨害するように選ばれた8-キノリノラート環置換基を表す) 具体的には、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(パラ-フェニルフェノール)アルミニウム(III)(以下PC-7)、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム(III)(以下PC-17)等が挙げられる。その他、特開平6-9953号公報等によるドーピングを用いた高効率の青色と緑色の混合発光を得る方法が挙げられる。この場合、ホストとしては上記に記載した発光材料、ドーパントとしては、青色から緑色にまでの強い蛍光色素、例えばクマリン系あるいは上記記載のホストとして用いられているものと同様な蛍光色素を挙げることができる。具体的には、ホストとしてジスチルアリレン骨格の発光材料、特に好ましくは例えばDPVBi、ドーパントとしてはジフェニルアミノビニルアリレン、特に好ましくは例えばN,N-ジフェニルアミノビニルベンゼン(DPAVB)を挙げることができる。上記前記材料を用いて、発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。このようにして、形成される発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができる。通常5nm~5μmの範囲が好ましい。有機EL素子の発光層は以下の機能を

併せ持つものである。すなわち、①注入機能；電界印加時に陽極または正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極または電子注入層より電子を注入することができ、②輸送機能；注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能、③発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、がある。但し、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また正孔と電子の移動度であらわされる輸送能に大小があててもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

③-3. 正孔注入層

次に、正孔注入層は、必ずしも本発明に用いられる素子に必要なものではないが、発光性能の向上のために用いた方が好ましいものである。この正孔注入層は発光層への正孔注入を助ける層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが、通常5.5eV以下と小さい。このような正孔注入層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、たとえば $10^4 \sim 10^6 \text{ V/cm}$ の電界印加時に、少なくとも $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{秒}$ であればなお好ましい。このような正孔注入材料については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0061】具体例としては、例えばトリアゾール誘導体(米国特許3,112,197号明細書等参照)、オキサジアゾール誘導体(米国特許3,189,447号明細書等参照)、イミダゾール誘導体(特公昭37-16096号公報等参照)、ポリアリールアルカン誘導体(米国特許3,615,402号明細書、同第3,820,989号明細書、同第3,542,544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照)、ピラゾリン誘導体およびピラズロン誘導体(米国特許第3,180,729号明細書、同第4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照)、フェニレンジアミン誘導体(米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照)、アリールアミン誘導体(米国特許第3,567,450号明細書、同第3,1

80, 703号明細書、同第3, 240, 597号明細書、同第3, 658, 520号明細書、同第4, 232, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細書、同第4, 012, 376号明細書、特開昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1, 110, 518号明細書等参照)、アミノ置換カルコン誘導体(米国特許第3, 526, 501号明細書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3, 257, 203号明細書等に開示のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-46234号公報等参照)、フルオレノン誘導体(特開昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3, 717, 462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)、シラザン誘導体(米国特許第4, 950, 950号明細書)、ポリシラン系(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-282263号公報)、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー(特にチオフェンオリゴマー)等を挙げることができる。正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物(特開昭63-2956965号公報等に開示のもの)、芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物(米国特許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。上記ポルフィリン化合物の代表例としては、ポルフィン、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィン銅(II)、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィン亜鉛(II)、5, 10, 15, 20-テトラキス(ペンタフルオロフェニル)-21H, 23H-ポルフィン、シリコンフタロシアニンオキシド、アルミニウムフタロシアニクロリド、フタロシアニン(無金属)、

ジリチウムフタロシアニン、銅テトラメチルフタロシアニン、銅フタロシアニン、クロムフタロシアニン、亜鉛フタロシアニン、鉛フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキシド、Mgフタロシアニン、銅オクタメチルフタロシアニン等を挙げることができる。また、前記芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニル、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス-(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン(以下TPDと略記する)、2, 2-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)プロパン、1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、N, N, N', N'-テトラ-*p*-トリル-4, 4'-ジアミノフェニル、1, 1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニルエーテル、4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル、N, N, N-トリ(*p*-トリル)アミン、4-(ジ-*p*-トリルアミノ)-4'-[4(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン、4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン、3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン、N-フェニルカルバゾール、米国特許第5, 061, 569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(以下NPDと略記する)、また、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(以下MTDA TAと略記する)等を挙げることができる。また、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリデン系化合物の他、*p*型-Si, *p*型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。正孔注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm~5μmである。この正孔注入層は、上述した材料の一種または二種以上からなる一層で構成されていてもよいし、または、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。また、有機半導体層は、発光層への正孔注入または電子注入を助ける層であって、 10^{-10} S/cm以上の導電率を有するものが

好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンオリゴマーなどの導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマーなどの導電性デンドリマーなどを用いることができる。

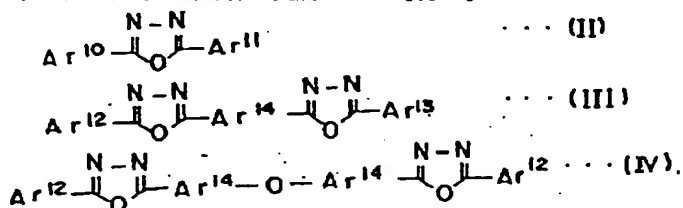
【0062】④-4. 電子注入層

一方電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で、特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、たとえば8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属*

* 錯体、あるいはオキサジアゾール誘導体が好ましく挙げられる。また、付着改善層に用いられる材料としては、特に8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシ（一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン）のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられる。一方、オキサジアゾール誘導体としては、一般式(II)、(III)および(IV)

【0063】

【化8】

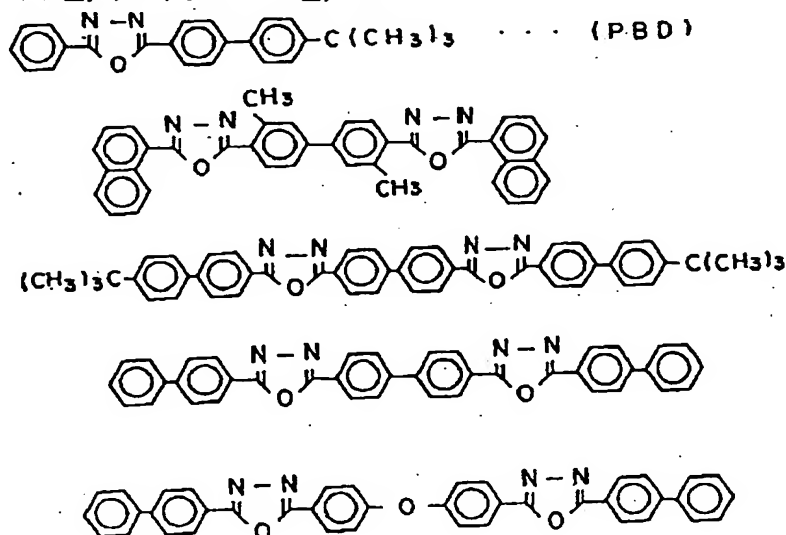


【0064】(式中 $\text{Ar}^{10} \sim \text{Ar}^{13}$ はそれぞれ置換または無置換のアリール基を示し、 Ar^{10} と Ar^{11} および Ar^{12} と Ar^{13} はそれぞれにおいて互いに同一であっても異なってもよく、 Ar^{14} 置換または無置換のアリレン基を示す。)で表わされる電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレン基、ピレン基などが挙げられ、アリレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラセニレン基、ペ※

※ニレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達化合物の具体例としては、下記のものを挙げることができる。

【0065】

【化9】



【0066】④-5. 電極(例えば陰極)

陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム-銀合金、アル

ミニウム/酸化アルミニウム(Al_2O_3)、アルミニウム-リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。この陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 Ω/\square 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm

m~1μm、50~200nmの範囲が好ましい。なお、本発明に用いられるEL素子においては、該陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であることが、発光を透過するため、発光の取り出し効率がよいので好ましい。

【0067】⑤多色発光装置の製造方法

以下、本発明の多色発光装置の製造方法を図11、および図12を参照しつつ説明する。

a) 透明電極／透明な絶縁層／支持基板を順次積層する工程

支持基板2（図11（A））の一の面上に透明な絶縁層3の材料を、蒸着、スパッタリング、イオンブレーティング、または材料を溶媒中に分散してスピンコート、ロールコート、キャストイング、ディッピング、印刷手法等の方法によって製膜する。製膜の方法、または支持基板の耐熱性に応じて、製膜中または後に支持基板2を50℃~500℃程度まで加熱する。支持基板2が金属の場合は、熱酸化法、気相成長法、スパッタリング法、有機物分解法、陽極酸化法等の酸化処理によって支持基板の表面に金属酸化物（無機酸化物）の膜を形成し透明な絶縁層とすることができる。本発明では、耐熱性に問題がある有機物の蛍光体層を配置する前なので、例えばゾルゲルガラス技法のような400℃以上の高温処理が可能である。また、絶縁層3がすでに形成されたガラス板、または透明電極1aを製膜したガラス板のような場合は、支持基板2と透明な接着層（接着剤）12を介して接合（接着）する。接着の方法は、支持基板上に接着剤をスピンコート、ロールコート、キャストイング、印刷手法等の方法によって製膜し、ガラス板を均一に支持基板に貼り合わせ、それぞれの接着剤の処方に従って、光、熱、化学混合等にて接着を完了させる。このような支持基板2上に透明な絶縁層3が積層された基板上に有

機EL素子の透明電極1aを絶縁層と同様な方法によって製膜する（図11（B））。

【0068】b) 支持基板に空隙を形成する工程

支持基板2の他の面上にフォトリソレジストを、液状の場合は、スピンコート、ロールコート、スプレイコート、キャストイング、ディッピング等の方法で、またフィルム状の場合は、ラミネートして均一に貼り合わせる。次いで、通常のフォトリソグラフィ法によりフォトリソレジストのパターンを形成する。または、スクリーン印刷、オフセット印刷のような印刷法によって、レジストのパターンを形成する。次いで、支持基板2の露出した部分を化学エッチング、電解エッチング、ドライエッチング（プラズマエッチング、リアクティブイオンエッチング、イオンビームエッチング、レーザーエッチング等）またはサンドブラストのような物理的な方法によってエッチングして空隙2aを形成する（図11（C））。各種支持基板に対する化学エッチングのエッチング液組成と条件とを表3に示す。支持基板のエッチング条件は、絶縁層も同時にエッチングされない条件とすることが必要である。エッチングの条件によっては、反対面の透明電極がエッチングされたり、劣化したりするので、必要に応じてレジストを透明電極上に製膜して保護しておく。次に、レジストのパターンを適当な剥離液にて処理して剥離する。なお、フォトリソレジストとして、黒色顔料含有のレジストを用いた場合には、そのままパターンを残してブラックマトリックスとして用いる。また、支持基板と透明な絶縁層が同一の材料の場合、例えばガラス板の場合には、片面に透明電極を製膜した後、反対面のガラス面を同様にしてエッチングするが、透明電極と空隙の間にガラス部分を残す。

【0069】

【表3】

支持基板	エッチング液組成と条件の例
鉄、鉄-ニッケル	1. 38~42° Be° 塩化第二鉄液
アルミニウム	1. 20%中性ソーダ (50~90℃) 2. 38%濃硫酸1容+水4容 (22~65℃) 3. 40° Be° 塩化第二鉄4リットル+38%濃硫酸340g (43℃以下)
陽極酸化したアルミニウム	1. 20%中性ソーダ (室温) 2. 40° Be° 塩化第二鉄4リットル+38%濃硫酸340g (43℃以下) 3. 38%濃硫酸1容+水4容
クロム	1. 40° Be° 塩化第二鉄2容+濃硫酸1容 (80℃) 2. 濃硫酸3容+水7容 (80℃) 3. 硝酸第二セリウムアンモン+濃硫酸
銅、銅合金	1. 塩化第二鉄液 2. 濃硫酸アンモン+塩化第二水銀 3. 塩化第二鉄液
金	1. 王水 (金溶解が早い場合) 2. シアン化ソーダ+濃硫酸水素
マグネシウム	1. 5~10%硝酸
モリブデン	1. 硝酸1容+ 濃硫酸1容+水3容 2. 硝酸+中性ソーダ
ニクロム	1. 塩化第二鉄液 2. 濃硫酸1容+ 硫酸1容+水3容
ステンレススチール	1. 38~42° Be° 塩化第二鉄液 2. 塩化第二鉄液+硝酸 3. 濃硫酸100部+硝酸第一水銀6.5部+水100部 4. 37%濃硫酸1容+70%硝酸1容+水3容
銀	1. 55%硝酸第二鉄液 2. 加水クロム酸40g+濃硫酸20ml+水2000ml (濃硫酸に注意)
銅	1. 38~42° Be° 塩化第二鉄液 2. 塩化第二鉄液+硝酸 3. 濃硫酸300ml+水700ml 4. 濃硫酸300ml+硝酸35g+水700ml
チタン	1. 40%硝酸1容+水9容 (30~82℃) 2. 濃硫酸+硝酸
亜鉛	1. 硝酸液
ガラス、セラミック	1. ふっ酸 2. ふっ酸+塩化アンモニウム
酸化銅 (皮膜)	1. 粉末亜鉛と10%硝酸液 (室温) 2. ふっ酸
酸化インジウム (皮膜)	1. 38~42° Be° 塩化第二鉄液 2. テオシアン酸ナトリウム+硝酸ナトリウム
シリコン、ゲルマニウム	1. ふっ酸と硝酸あるいは濃硫酸を含む溶液 (SiとGeに対して) 2. 硝酸第二セリウムアンモン+濃硫酸ガスを含むエッチング (Ge)
ポリエステル	1. 濃硫酸 2. 濃硫酸+スルファミン酸
ポリイミド	1. 50%中性ソーダ (105~110℃) 2. ヒドラジンとエチレンジアミン
タンタル	1. 30~40%中性ソーダ (70~80℃) 2. ふっ酸

【0070】c) 透明電極をバターンニングする工程

透明電極1a上に、前記b)工程と同じようにフォトレジストを製膜し、支持基板2の空隙部分2aに位置合わせして、フォトリソグラフィ法にてフォトレジストのバターンを形成する。または、スクリーン印刷、オフセット印刷のような印刷法によってレジストのバターンを形成してもよい。次いで、透明電極に適したエッチング液 (ITOの場合は塩化鉄 (III) 水溶液または塩酸、臭化水素酸水溶液) で透明電極をエッチングする。エッチングの条件によっては、反対面の支持基板がエッチングされたり劣化したりするので、必要に応じてレジストを支持基板上に製膜して保護しておく。次に、レジストのバターンを適当な剥離液にて処理して剥離し、バターンニングした透明電極を形成する (図11 (D))。な

お、支持基板に遮光性があれば、マスクとして用いて、支持基板側から透明電極上のフォトレジストを露光し、セルフアライメントによりフォトレジストのバターンを形成することができる。なお、透明電極のバターンニングは、b)の支持基板に空隙を形成する工程の前に行ってもよい。また、有機EL素子の電極を加工する (特願平8-38217号公報) ために層間絶縁膜を形成する場合には、透明電極のバターンニング後 (蛍光体層の埋設前) に層間絶縁膜の形成を行うのが好ましい。

【0071】d) 空隙に蛍光体層を埋設する工程

蛍光体層4が主に蛍光色素からなる場合は、所望の蛍光体層バターンのマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で製膜して、空隙2a内に蛍光体層4を埋設する (図11 (E))。一方、蛍光体層4が蛍光顔料また

は蛍光色素、蛍光顔料とバインダー樹脂からなる場合は、それぞれを適当な溶剤中に混合、分散または可溶化させ、スピンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で製膜し、フォトリソグラフィ法で所望の蛍光体層パターンでパターンニングして、空隙内に埋設したり、スクリーン印刷等の方法で所望の蛍光体層パターンでパターンニングして、空隙内に埋設するのが一般的である。なお、カラーフィルタを形成する場合も、蛍光体層と同様な方法を用いることができる。

【0072】e) 有機EL素子の作製

先に例示した材料および方法により発光層、必要に応じて正孔注入層、および必要に応じて電子注入層を形成し、(以上有機物層1b)、さらに電極(例えば陰極)1cを形成することにより、有機EL素子を作製することができる。また、電極(例えば陰極)1cから透明電極(例えば陽極)1aへ、前記と逆の順序で有機EL素子1を作製することもできる。以下に透明電極(例えば陽極)/正孔注入層/発光層/電子注入層/電極(例えば陰極)が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。まず、陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物(正孔注入層の材料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50~450℃、真空度 10^{-7} ~ 10^{-3} torr、蒸着速度0.01~50 nm/sec、基板温度-50~300℃、膜厚5nm~5μmの範囲で適宜選択することが好ましい。次に、正孔注入層に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて、真空蒸着法、スパッタリング、スピンコート法、キャスト法等の方法により、有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じような条件範囲の中から選択することができる。次に、この発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は、正孔注入層、発光層と同様条件範囲から選択することができる。最後に、陰極を積層して有機EL素子を得ることができる(図11(F))。陰極は、金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし、下地の有機物層を成膜時の損傷から守るためには、真空蒸着法が好ましい。これまで記載してきた有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して陽極から

陰極まで作製することが好ましい。なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を+、陰極を-の極性にして、5~40Vの電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には、陽極が+、陰極が-の極性になったときのみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。以上の多色発生装置の製造法の利点は、200℃以上の高温処理が必要とされる工程を先に行い、後で耐熱性に問題のある有機物の蛍光体層、有機EL素子の作製を行うことによって、蛍光体、有機EL素子の発光効率等の性能劣化を低減できることである。

【0073】なお、図12は、支持基板2の上に、直接、透明電極1aを形成する場合を示す。この場合においても、構造的に蛍光体層および支持基板と有機EL素子の間に透明な絶縁層が配設されていることになる。

【0074】

【実施例】以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

20 【実施例1】支持基板の100mm×100mm×0.1mm厚のステンレススチール(SUS304)基板上に、酸化ケイ素(SiO_2)系被膜形成用塗布液(東京応化工業製OCD Type7)をスピンコートし、450℃で焼成し、透明な絶縁膜として10μmの酸化シリコン膜を形成した。次いで、基板を200℃に加熱し、酸化ケイ素膜上にスパッタリングにより0.15μm膜厚、 $20\Omega/\square$ のITO(インジウム錳酸化物)の透明電極を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソスト(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR 204)をITO上に保護膜として、基板の反対面上に支持基板エッチング用レジストとしてスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、50μmライン250μmギャップのストライプ状の支持基板の空隙パターンが得られるマスクを介して支持基板エッチング用レジストを露光した。次に、2.38%TMAH(テトラメチルアンモニウムヒドロキシド)水溶液にてレジストを現像し、150℃にてポストベークした。次に、基板を40℃のボウメ42の塩化第二鉄水溶液に浸漬し、液を攪拌して、レジストパターンの支持基板の露出している部分をエッチングし、基板に残っているレジストを剥離して、支持基板に空隙を形成した。次に、ITO上にネガ型のフォトリソスト(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製IC28-T3)をスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、支持基板側から露光し、専用現像液(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製WNRD)にてレジストを現像し、150℃にてポストベークした。次に、基板を室温の47重量%臭化水素酸水溶液に浸漬し、レジストパターンのITOの露出している部分をエッチングし、基板に残っているレジストを剥離して、有機EL素子の透明電極(陽極)

の250 μ mライン50 μ mギャップのストライプ状パターンを形成した。次に、基板をスクリーン印刷機にセットし、250 μ mライン650 μ mギャップのストライプ状のパターンが得られる版を用いて、0.03mol/kg(固形分)の濃度のクマリン6/ポリ塩化ビニル樹脂(平均分子量2万)をシクロヘキサノンに溶解したインキ(粘度8000cps)を支持基板の空隙中に印刷し、80℃でベークして、15 μ m膜厚の蛍光体層Aのパターンを得た。次に、版をストライプに対して垂直方向へ300 μ mずらして、43重量%(固形分)のローダミン含有顔料/ポリ塩化ビニル樹脂(平均分子量2万)をシクロヘキサノンに溶解したインキ(粘度8000cps)を支持基板の別の空隙中に印刷し、80℃でベークして、20 μ m膜厚の蛍光体層Bのパターンを得た。次に、この基板をIPA洗浄、UV洗浄した後、蒸着装置(日本真空技術社製)の基板ホルダーに固定した。蒸着源は、モリブテン製の抵抗加熱ボートに正孔注入材料としてMTDATA及びNPD、発光材料としてDPVBi、電子注入材料としてAlqをそれぞれ仕込み、電極(陰極)の第二金属としてAgをタングステン製フィラメントに、電極(陰極)の電子注入性金属としてMgをモリブテン製ボートに装着した。その後、真空槽を5 $\times 10^{-7}$ torrまで減圧後、以下の順序で順次積層していった。正孔注入層から陰極まで途中で真空を破らず一回の真空引きでおこなった。まず正孔注入層としては、MTDATAを蒸着速度0.1~0.3nm/s、膜厚200nm、NPDを蒸着速度0.1~0.3nm/s、膜厚20nm、発光層としてはDPVBiを蒸着速度0.1~0.3nm/s、膜厚50nm、電子注入層としては、Alqを蒸着速度0.1~0.3nm/s、膜厚20nm、陰極としては、陽極ITOストライプパターンに対し垂直とし、600 μ mライン、100 μ mギャップのストライプパターンになるようなマスクを介して、MgとAgを同時蒸着した。すなわち、Mgは、蒸着速度1.3~1.4nm/s、Agは、蒸着速度0.1nm/sで膜厚を200nmとした。このようにして、有機EL多色発光装置を作製し(図2)、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、蛍光体層のない部分から見える光の発光輝度は、120cd/m²、CIE色度座標(JIS Z 8701)はx=0.15、y=0.15で青色の発光がでていることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、140cd/m²、CIE色度座標はx=0.28、y=0.62で黄味がかった緑色(イエロイッシュグリーン)の発光がでていることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、36cd/m²、CIE色度座標はx=0.60、y=0.31で赤色の発光がでていることを確認した。以上のように有機EL多色発光装置を作製し、二週間、窒素気流下で保存して

も輝度および色度座標に全く変化がなく、劣化とともに発生する黒点もなく、均一な発光を維持していた。また、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光(単色)の漏れを確認できない範囲の視野角は、 $\pm 80^\circ$ であり、実用上問題とならないレベルであった。なお、本実施例に用いた10 μ m膜厚の酸化ケイ素膜の水分含有量は、0.1重量%以下であり、水蒸気または酸素の酸化ケイ素膜に対するガス透過係数は、それぞれ 10^{-11} cc \cdot cm/cm² \cdot s \cdot cmHg以下であった。

【0075】[実施例2] 支持基板の100mm \times 100mm \times 0.1mm厚のステンレススチール(SUS304)基板上に、メタクリレート系オリゴマーの光硬化型透明接着剤(スリーボンド社製3102)をキャストし、0.15 μ m膜厚、20 Ω /□のITOをベタ成膜した100mm \times 100mm \times 50 μ m厚のガラス板(ホウケイ酸ガラス)のガラス面を貼り合わせ、紫外線照射後、80℃でベークした。以下、実施例1と同一の方法で多色発光装置(図7)を作製し、同一の結果が得られた。なお、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光(単色)の漏れを確認できない範囲の視野角は、 $\pm 60^\circ$ であり、実用上問題とならないレベルであった。なお、本実施例に用いた50 μ m厚のガラス板の水分含有量は、0.1重量%以下であり、水蒸気または酸素のガラス板に対するガス透過係数は、それぞれ 10^{-11} cc \cdot cm/cm² \cdot s \cdot cmHg以下であった。

【0076】[実施例3] 支持基板の100mm \times 100mm \times 0.1mm厚のアルミニウム合金基板上に、アクリレート系の熱硬化性樹脂(オプトマーSS7265)をスピンコートし、220℃でベークし(膜厚1.0 μ m)、さらに、基板を200℃に加熱して、酸化アルミニウム(Al₂O₃)をスパッタリングして、0.20 μ m膜厚の酸化アルミニウム膜を積層し、透明な絶縁膜を形成した。以下、支持基板の空隙形成に30℃のボウメ40の塩化第二鉄4Lと36重量%濃塩酸340gの割合からなるエッチング液を用いたこと以外は、実施例1と同一の方法で多色発光装置(図2)を作製し、同一の結果が得られた。なお、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光(単色)の漏れを確認できない範囲の視野角は、 $\pm 80^\circ$ であり、実用上問題とならないレベルであった。なお、本実施例に用いた0.20 μ m膜厚の酸化アルミニウムの水分含有量は、0.1重量%以下であり、水蒸気または酸素の酸化アルミニウム膜に対するガス透過係数は、それぞれ 10^{-11} cc \cdot cm/cm² \cdot s \cdot cmHg以下であった。

【0077】[実施例4] 支持基板の100mm \times 100mm \times 0.1mm厚のチタン合金基板上に、アクリレート系の熱硬化性樹脂(オプトマーSS7265)をスピンコートし、220℃でベークし(膜厚1.0 μ m)、さらに、基板を200℃に加熱して、酸化チタン(TiO₂)をスパッタリングして、0.20 μ m膜厚の酸化

チタン膜を積層し、透明な絶縁膜を形成した。以下、支持基板の空隙形成に30℃の40重量%フッ酸1Lと純水9Lの割合からなるエッチング液を用いたこと以外は、実施例1と同一の方法で多色発光装置(図2)を作製し、同一の結果が得られた。なお、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光(単色)の漏れを確認できない範囲の視野角は、±80°であり、実用上問題とならないレベルであった。なお、本実施例に用いた0.20μm膜厚の酸化チタンの水分含有量は、0.1重量%以下であり、水蒸気または酸素の酸化チタン膜に対するガス透過係数は、それぞれ 10^{-11} cc・cm/cm²・s・cmHg以下であった。

【0078】[実施例5] 実施例1の支持基板、透明な絶縁層、透明電極(ITO)を形成した基板上に、ポジ型フォトリソ(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR204)をITO上に保護膜として、基板の反対面上にネガ型のカーボンブラック含有アクリレート系レジスト(新日鉄化学社製V259BK)を支持基板エッチング用レジストとしてスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、50μmライン250μmギャップのストライプ状の支持基板の空隙パターンが得られるマスクを介して支持基板エッチング用レジストを露光した。次に、1N炭酸ナトリウム水溶液にてレジストを現像し、200℃にてポストベークし、ブラックマトリックスを形成した。一方、ITO上の保護膜のレジストは剥離した。以下、実施例1と同一の方法で多色発光装置(図5)を作製し、同一の結果が得られた。なお、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光(単色)の漏れを確認できない範囲の視野角は、±80°であり、実用上問題とならないレベルであった。

【0079】[実施例6] 支持基板として0.15μm膜厚、20Ω/□のITO(インジウム錫酸化物)の透明電極を成膜した100mm×100mm×0.7mm厚のガラス(ホウケイ酸ガラス)基板を準備した。次に、ポジ型のフォトリソ(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR204)をITO上に保護膜として、基板の反対面上にネガ型のカーボンブラック含有アクリレート系レジスト(新日鉄化学社製V259BK)を支持基板エッチング用レジストとしてスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、50μmライン250μmギャップのストライプ状の支持基板の空隙パターンが得られるマスクを介して支持基板エッチング用レジストを露光した。次に、1N炭酸ナトリウム水溶液にてレジストを現像し、200℃にてポストベークし、ブラックマトリックスを形成した。次に、基板をサンドブラストにより、ブラックマトリックス側に露出したガラスをサンドブラスト加工し、0.6mmの深さの空隙を形成した。一方、ITO上の保護膜を剥離剤にて剥離した。次に、ITO上にネガ型のフォトリソ(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製IC2

8-T3)をスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、ブラックマトリックス側から露光し、専用現像液(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製WNRD)にてレジストを現像し、150℃にてポストベークした。次に、基板を室温の47重量%臭化水素酸水溶液に浸漬し、レジストパターンのITOの露出している部分をエッチングし、基板に残っているレジストを剥離して、有機EL素子の透明電極(陽極)の250μmライン50μmギャップのストライプ状パターンを形成した。以下、実施例1と同一の方法で多色発光装置(図5)を作製し、同一の結果が得られた。なお、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光(単色)の漏れを確認できない範囲の視野角は、±60°であり、実用上問題とならないレベルであった。

【0080】[実施例7] 実施例1の支持基板、透明な絶縁層、透明電極(ITO)を形成した基板上に、ポジ型フォトリソ(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR204)をITO上に保護膜として、基板の反対面上にネガ型のカーボンブラック含有アクリレート系レジスト(新日鉄化学社製V259BK)を支持基板エッチング用レジストとしてスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、50μmライン250μmギャップのストライプ状の支持基板の空隙パターンが得られるマスクを介して支持基板エッチング用レジストを露光した。次に、1N炭酸ナトリウム水溶液にてレジストを現像し、200℃にてポストベークし、ブラックマトリックスを形成した。一方、ITO上の保護膜のレジストは剥離した。次に、ITO上にネガ型のフォトリソ(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製IC28-T3)をスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、ブラックマトリックス側から露光し、専用現像液(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製WNRD)にてレジストを現像し、150℃にてポストベークした。次に、基板を室温の47重量%臭化水素酸水溶液に浸漬し、レジストパターンのITOの露出している部分をエッチングし、基板に残っているレジストを剥離して、有機EL素子の透明電極(陽極)の250μmライン50μmギャップのストライプ状パターンを形成した。次に、基板をスクリーン印刷機にセットし、250μmライン650μmギャップのストライプ状のパターンが得られる版を用いて、銅フタロシアニン系顔料(C. I. ピグメントブルー15:6)を28重量%、ジオキサジン系顔料(C. I. ピグメントバイオレット23)を2重量%、ポリ塩化ビニル樹脂(重量平均分子量2万)70重量%の割合でシクロヘキサノンに分散したインキ(粘度8000cps)を、支持基板の空隙中に印刷し、80℃でベークして、1.5μm膜厚の青色カラーフィルタのパターンを得た。次に、版をストライプに対して垂直方向へ300μmずらして、0.03mol/kg(固形分中)の濃度のクマリン6

／ポリ塩化ビニル樹脂（平均分子量2万）をシクロヘキサノンに溶解したインキ（粘度8000cps）を支持基板の別の空隙中に印刷し、80℃でベークして、15μm膜厚の蛍光体層Aのパターンを得た。次に、版をストライプに対して垂直方向へ300μmずらして、43重量%（固形分中）のローダミン含有顔料／ポリ塩化ビニル樹脂（平均分子量2万）をシクロヘキサノンに溶解したインキ（粘度8000cps）を支持基板の別の空隙中に印刷し、80℃でベークして、20μm膜厚の蛍光体層Bのパターンを得た。次に、この基板をIPA洗浄、UV洗浄した後、蒸着装置（日本真空技術製）の基板ホルダーに固定した。蒸着源は、モリブテン製の抵抗加熱ポートに正孔注入材料としてMTDATA及びNPD、発光材料としてDPVBi、ドーパントとしてDPAVB、電子注入材料としてAlqをそれぞれ仕込み、電極（陰極）の第二金属としてAgをタングステン製フィラメントに、電極（陰極）の電子注入性金属としてMgをモリブテン製ポートに装着した。その後、真空槽を5×10⁻⁷torrまで減圧後、以下の順序で順次積層していった。正孔注入層から陰極まで途中で真空を破らず一回の真空引きでおこなった。まず正孔注入層としては、MTDATAを蒸着速度0.1～0.3nm/s、膜厚200nm、NPDを蒸着速度0.1～0.3nm/s、膜厚20nm、発光層としてはDPVBiを蒸着速度0.1～0.3nm/s、DPAVBを蒸着速度0.05nm/sで同時蒸着して併せて膜厚40nm（ホスト材料に対するドーパントの重量比は1.2～1.6）とし、電子注入層としては、Alqを蒸着速度0.1～0.3nm/s、膜厚20nm、陰極としては、陽極ITOストライプパターンに対し垂直とし、600μmライン、100μmギャップのストライプパターンになるようなマスクを介して、MgとAgを同時蒸着した。すなわち、Mgは、蒸着速度1.3～1.4nm/s、Agは、蒸着速度0.1nm/sで膜厚を200nmとした。このようにして、有機EL多色発光装置を作製し（図6）、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、42cd/m²—CIE色度座標（JIS Z 8701）はx=0.14、y=0.12で青色の発光がでていることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、140cd/m²、CIE色度座標はx=0.28、y=0.62で黄味がかかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光がでていることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、136cd/m²、CIE色度座標はx=0.60、y=0.31で赤色の発光がでていることを確認した。以上のように有機EL多色発光装置を作製し、二週間、窒素気流下で保存しても輝度および色度座標に全く変化がなく、劣化とともに発生する黒点もなく、均一な発光を維

持していた。また、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光（単色）の漏れを確認できない範囲の視野角は、±80°であり、実用上問題とならないレベルであった。

【0081】[比較例1] 100mm×100mm×1.1mmのガラス基板（コーニング7059）をスクリーン印刷機にセットし、250μmライン650μmギャップのストライプ状のパターンが得られる版を用いて、0.03mol/kg（固形分中）の濃度のクマリン6／ポリ塩化ビニル樹脂（平均分子量2万）をシクロヘキサノンに溶解したインキ（粘度8000cps）をガラス基板の上に印刷し、80℃でベークして、15μm膜厚の蛍光体層Aのパターンを得た。次に、版をストライプに対して垂直方向へ300μmずらして、43重量%（固形分中）のローダミン含有顔料／ポリ塩化ビニル樹脂（平均分子量2万）をシクロヘキサノンに溶解したインキ（粘度8000cps）を蛍光体層Aに隣接した位置に印刷し、80℃でベークして、20μm膜厚の蛍光体層Bのパターンを得た。次に、蛍光体層上にメタクリレート系光硬化型樹脂（新日鉄化学製：V259PA）をスピンコートし、80℃でベークし、さらに300mJ/cm²（365nm）の紫外線露光し、さらに150℃でベークして、5μm厚の透明な保護層を積層した。次いで、180℃で加熱した基板上にスパッタリングによりITOを0.12μm膜厚、20Ω/□のITOをベタ成膜した。次に、ITO上にポジ型のフォトリソ（富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR204）をスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、250μmライン50μmギャップのITOストライプパターンが得られるマスクを蛍光体A、Bに位置合わせしてからそのマスクを介して露光し、2.38%TMAH水溶液にてレジストを現像し、130℃にてポストベーク後、臭化水素酸水溶液で露出したITOをエッチングし、最後にレジストを剥離して、有機EL素子の透明電極を作製した。以下、実施例1と同一の条件で有機EL素子を作製し、有機EL多色発光装置を作製した（図13）。直流8Vの電圧を陽極（透明電極）と陰極（電極）に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、蛍光体層のない部分から見える光の発光輝度は、100cd/m²、CIE色度座標（JIS Z 8701）はx=0.15、y=0.15で青色の発光がでていることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、120cd/m²、CIE色度座標はx=0.28、y=0.62で黄味がかかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光がでていることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、30cd/m²、CIE色度座標はx=0.60、y=0.31で赤色の発光がでていることを確認した。この結果、実施例1の各色の発光輝度に比べて80%程度低くなってお

り、本発明の構成が発光効率に優れていることが確認できた。また、二週間、窒素気流下で保存すると、同条件で蛍光体層のない部分から見える光の発光輝度は、 5 cd/m^2 まで低下し、劣化に伴う黒点が数多く発生し、明かに問題となり、保存寿命の面からも本発明の構成が発光効率に優れていることが確認できた。なお、本比較例に用いた $5 \mu\text{m}$ 膜厚のメタクリレート系光硬化型樹脂からなる保護膜の水分含有量は、1.2重量%であり、水蒸気または酸素の保護膜に対するガス透過係数は、それぞれ $10^{-11} \text{ cc} \cdot \text{cm/cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg}$ 以上であった。

【0082】【比較例2】支持基板として $0.15 \mu\text{m}$ 膜厚、 $20 \Omega/\square$ のITO（インジウム錫酸化物）の透明電極を成膜した $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm} \times 0.05 \text{ mm}$ 厚のガラス（ホウケイ酸ガラス）基板を準備した。次に、ITO上にポジ型のフォトリソ（富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR204）をスピンコートし、 80°C でベークした後、露光機にて、 $250 \mu\text{m}$ ライン $50 \mu\text{m}$ ギャップのITOストライプパターンが得られるマスクを介して露光し、2.38重量% TMAH水溶液にてレジストを現像し、 130°C にてポストベーク後、臭化水素酸水溶液で露出したITOをエッチングし、最後にレジストを剥離して、有機EL素子の透明電極を作製したが、支持基板の厚みが薄いため、ITOパターニングプロセス中の取扱い上の衝撃にて、基板の破損が多発し、製造歩留まりが著しく低かった。そこで、支持基板として、 $0.15 \mu\text{m}$ 膜厚、 $20 \Omega/\square$ のITO（インジウム錫酸化物）の透明電極を成膜した $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm} \times 0.7 \text{ mm}$ 厚のガラス（ホウケイ酸ガラス）基板を準備した。次に、先と同じようにITOのパターニングを行った。次に、この基板をスクリーン印刷機にセットし、 $250 \mu\text{m}$ ライン $650 \mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のパターンが得られる版を用いて、 0.03 mol/kg （固形分中）の濃度のクマリン6/ポリ塩化ビニル樹脂（平均分子量2万）をシクロヘキサノンに溶解したインキ（粘度 8000 cps ）を支持基板のITOと反対側に印刷し、 80°C でベークして、 $15 \mu\text{m}$ 膜厚の蛍光体層Aのパターンを得た。次に、版をストライプと垂直方向へ $300 \mu\text{m}$ ずらして、43重量%（固形分中）のローダミン含有顔料/ポリ塩化ビニル樹脂（平均分子量2万）をシクロヘキサノンに溶解したインキ（粘度 8000 cps ）を蛍光体層Aに隣接した位置に印刷し、 80°C でベークして、 $20 \mu\text{m}$ 膜厚の蛍光体層Bのパターンを得た。以下、実施例1と同一の方法で有機EL素子を作製して多色発光装置（図10）を作製し、直流8Vの電圧を陽極（透明電極）と陰極（電極）に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、蛍光体層のない部分から見える光の発光輝度は、 100 cd/m^2 、CIE色度座標（JIS Z 8701）は $x=0.15$ 、

$y=0.15$ で青色の発光がでていることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 120 cd/m^2 、CIE色度座標は $x=0.28$ 、 $y=0.62$ で黄味がかかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光がでていることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 30 cd/m^2 、CIE色度座標は $x=0.60$ 、 $y=0.31$ で赤色の発光がでていることを確認した。この結果、実施例1の各色の発光輝度に比べて80%程度低くなっており、本発明の構成が発光効率に優れていることが確認できた。さらに、二週間、窒素気流下で保存しても輝度および色度座標にほとんど変化がなく、劣化とともに発生する黒点も少なく、均一な発光を維持していたが、有機エレクトロルミネセンス素子の発光（単色）の漏れを確認できない範囲の視野角は、ほぼ $\pm 10^\circ$ であり、通常見る範囲に、発光色が異なって見える部分（角度）があり、実用上問題となり、視認性の面からも本発明の構成が優れていることが確認できた。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の多色発光装置の一例を模式的に示す概略断面図である。

【図2】本発明の多色発光装置の、蛍光体層を複数用いた実施例を模式的に示す概略断面図である。

【図3】本発明の多色発光装置の、青色カラーフィルタを用いた例を模式的に示す概略断面図である。

【図4】本発明の多色発光装置の、さらに緑色カラーフィルタおよび赤色カラーフィルタを用いた他の例を模式的に示す概略断面図である。

【図5】本発明の多色発光装置の、さらにブラックマトリックスを用いた実施例を模式的に示す概略断面図である。

【図6】本発明の多色発光装置の、空隙の側面を不透明とした他の実施例を模式的に示す概略断面図である。

【図7】本発明の多色発光装置の、透明な接着層を用いた実施例を模式的に示す概略断面図である。

【図8】本発明の多色発光装置の、さらに透明な保護層を用いた例を模式的に示す概略断面図である。

【図9】本発明の多色発光装置の、封止板の間に不活性流体を封入した例を模式的に示す概略断面図である。

【図10】従来の多色発光装置の一例（比較例）を模式的に示す概略断面図である。

【図11】本発明の多色発光装置の製造方法の実施例を模式的に示す概略断面図である。

【図12】本発明の多色発光装置の製造方法の、他の実施例を模式的に示す概略断面図である。

【図13】従来の多色発光装置の一例（比較例）を模式的に示す概略断面図である。

【符号の説明】

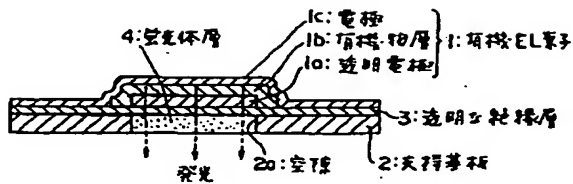
1 有機EL素子

1a 透明電極

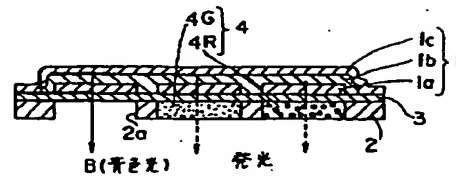
- 1b 有機物層
- 1c 電極
- 2 支持基板
- 2a 空隙
- 2b 空隙側面
- 3 透明な絶縁層
- 4 蛍光体層
- 5 カラーフィルタ

- * 6 ブラックマトリックス
- 7 平面化層 (保護層)
- 8 透明な保護層
- 9 封止板
- 10 不活性液体
- 11 透明基板
- 12 接着層 (接着剤)
- * 13 硬質要素

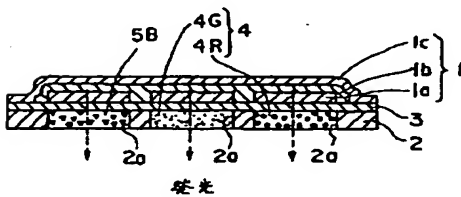
【図1】



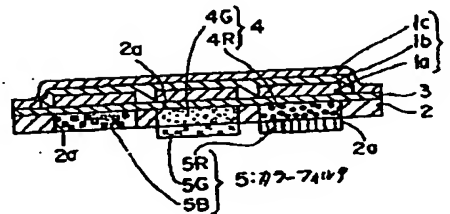
【図2】



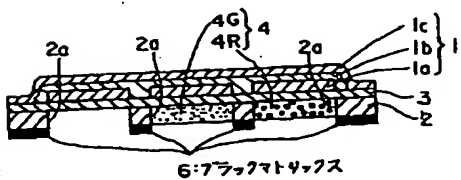
【図3】



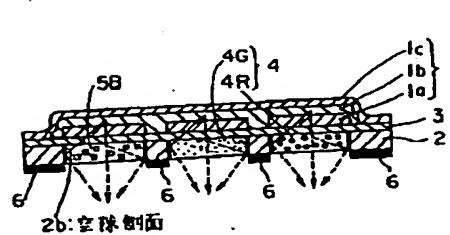
【図4】



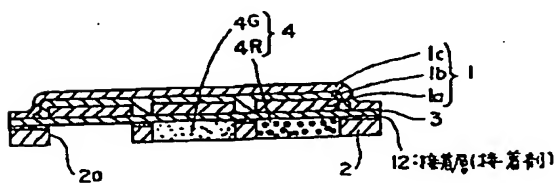
【図5】



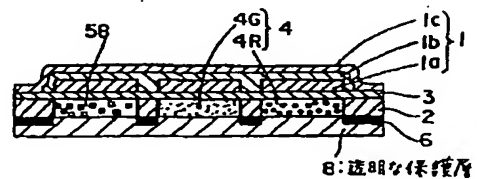
【図6】



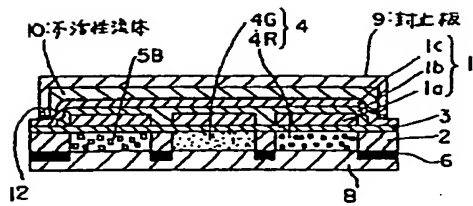
【図7】



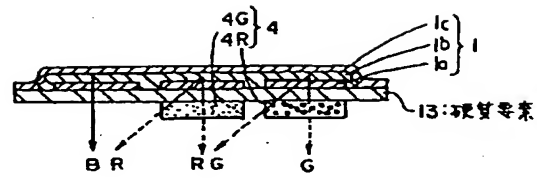
【図8】



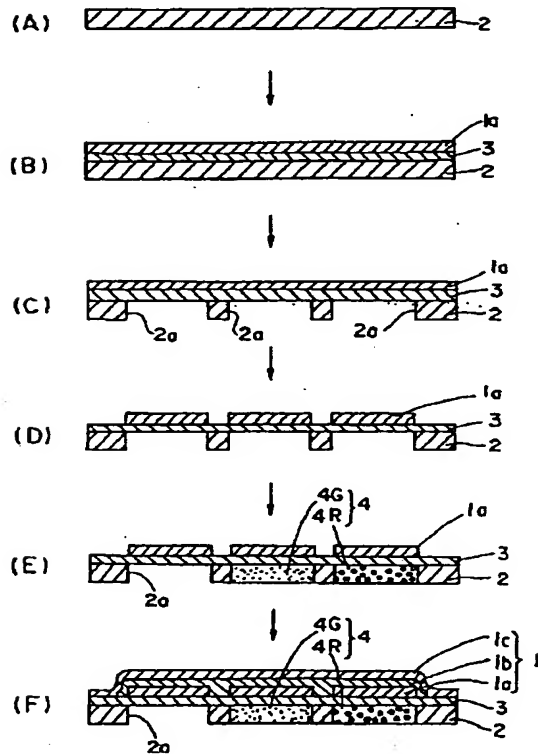
【圖9】



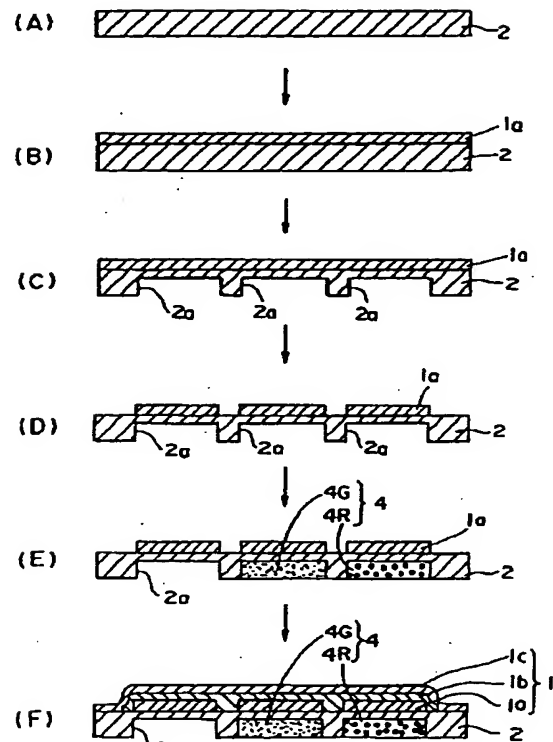
【圖10】



【圖11】



【圖12】



【圖13】

